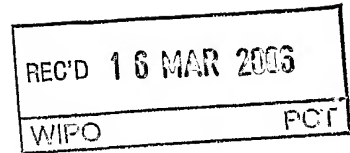


特許協力条約

PCT

特許性に関する国際予備報告（特許協力条約第二章）

（法第12条、法施行規則第56条）
〔PCT36条及びPCT規則70〕



出願人又は代理人 の書類記号 PCT113JST	今後の手続きについては、様式PCT/IPEA/416を参照すること。	
国際出願番号 PCT/J P 2005/001434	国際出願日 (日.月.年) 26.01.2005	優先日 (日.月.年) 30.01.2004
国際特許分類 (IPC) Int.Cl. C07B35/02 (2006.01), B01J31/28 (2006.01), C07C5/03 (2006.01), C07C5/08 (2006.01), C07C15/12 (2006.01), C07C15/18 (2006.01), C07C29/17 (2006.01),		
出願人 (氏名又は名称) 独立行政法人科学技術振興機構		

<p>1. この報告書は、PCT35条に基づきこの国際予備審査機関で作成された国際予備審査報告である。 法施行規則第57条（PCT36条）の規定に従い送付する。</p> <p>2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 8 ページからなる。</p> <p>3. この報告には次の附属物件も添付されている。</p> <p>a. <input checked="" type="checkbox"/> 附属書類は全部で 8 ページである。</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 補正されて、この報告の基礎とされた及び／又はこの国際予備審査機関が認めた訂正を含む明細書、請求の範囲及び／又は図面の用紙（PCT規則70.16及び実施細則第607号参照）</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 第I欄4.及び補充欄に示したように、出願時における国際出願の開示の範囲を超えた補正を含むものとのこの国際予備審査機関が認定した差替え用紙</p> <p>b. <input type="checkbox"/> 電子媒体は全部で (電子媒体の種類、数を示す)。 配列表に関する補充欄に示すように、電子形式による配列表又は配列表に関連するテーブルを含む。 (実施細則第802号参照)</p> <p>4. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 第I欄 国際予備審査報告の基礎</p> <p><input type="checkbox"/> 第II欄 優先権</p> <p><input type="checkbox"/> 第III欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成</p> <p><input type="checkbox"/> 第IV欄 発明の単一性の欠如</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 第V欄 PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明</p> <p><input type="checkbox"/> 第VI欄 ある種の引用文献</p> <p><input type="checkbox"/> 第VII欄 国際出願の不備</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 第VIII欄 国際出願に対する意見</p>	
--	--

国際予備審査の請求書を受理した日 15.07.2005	国際予備審査報告を作成した日 06.03.2006	
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 富永 保	4 H 3554
電話番号 03-3581-1101 内線 3443		

様式PCT/IPEA/409 (表紙) (2005年4月)

第I欄 報告の基礎

1. 言語に関し、この予備審査報告は以下のものを基礎とした。

- ☒ 出願時の言語による国際出願
☐ 出願時の言語から次の目的のための言語である _____ 語に翻訳された、この国際出願の翻訳文
- ☐ 国際調査 (PCT規則12.3(a)及び23.1(b))
☐ 国際公開 (PCT規則12.4(a))
☐ 国際予備審査 (PCT規則55.2(a)又は55.3(a))

2. この報告は下記の出願書類を基礎とした。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に応答するために提出された差替え用紙は、この報告において「出願時」とし、この報告に添付していない。)

- ☐ 出願時の国際出願書類
- ☒ 明細書
- 第 1-5、7-12 _____ ページ、出願時に提出されたもの
 第 6 _____ ページ*、26.12.2005 _____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの
 第 _____ ページ*、_____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの
- ☒ 請求の範囲
- 第 1、7、8 _____ 項、出願時に提出されたもの
 第 _____ 項*、PCT 19条の規定に基づき補正されたもの
 第 3-6、10-13 _____ 項*、15.07.2005 _____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの
 第 _____ 項*、_____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの
- ☒ 図面
- 第 1-8 _____ ページ/図、出願時に提出されたもの
 第 _____ ページ/図*、_____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの
 第 _____ ページ/図*、_____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの
- ☐ 配列表又は関連するテーブル
 配列表に関する補充欄を参照すること。

3. ☒ 補正により、下記の書類が削除された。

- ☐ 明細書 第 _____ ページ
☒ 請求の範囲 第 2、9 _____ 項
☐ 図面 第 _____ ページ/図
☐ 配列表 (具体的に記載すること) _____
☐ 配列表に関連するテーブル (具体的に記載すること) _____

4. ☒ この報告は、補充欄に示したように、この報告に添付されかつ以下に示した補正が出願時における開示の範囲を超えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則 70.2(c))

- ☒ 明細書 第 3、3/1、4、4/1 _____ ページ
☒ 請求の範囲 第 1、8、14-17 _____ 項
☐ 図面 第 _____ ページ/図
☐ 配列表 (具体的に記載すること) _____
☐ 配列表に関連するテーブル (具体的に記載すること) _____

* 4. に該当する場合、その用紙に "superseded" と記入されることがある。

第V欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性 (N)	請求の範囲 1、3-8、10-13	有
	請求の範囲 _____	無
進歩性 (I S)	請求の範囲 _____	有
	請求の範囲 1、3-8、10-13	無
産業上の利用可能性 (I A)	請求の範囲 1、3-8、10-13	有
	請求の範囲 _____	無

2. 文献及び説明 (PCT規則 70.7)

文献1: JP 2001-521816 A (ブリティッシュ・ニュークリア・フューエルズ・パブリック・リミテッド・カンパニー) 2001.11.13, 請求項 1, 4, 10, 【0007】, 図 2, 【0019】, 【0023】, 【0024】, 【0031】, 例 2 & WO 99/22857 A1 & EP 1028801 A1

文献2: CHAMBERS R. D., SPINK R. C. H., Microreactors for elemental fluorine, Chem. Commun., 1999, p.883-884, 第 883 頁左欄 30 行~右欄 4 行

文献3: OUYANG X., BESSER R. S., Development of a microreactor-based parallel catalyst analysis system for synthesis gas conversion, Catalysis Today, 84, 2003, p.33-41, 第 34 頁右欄 18 行~第 35 頁左欄 14 行

文献4: BESSER R. S. et al., Hydrocarbon hydrogenation and dehydrogenation reactions in microfabricated catalytic reactors, Chemical Engineering Science, 58, 2003, p.19-26, 第 21 頁左欄 1~4 行

文献5: KIJI J. et al. "A Convenient route to β , γ -unsaturated esters without formation of the α , β -isomers. Palladium-catalyzed alkoxycarbonylation of allylic halides under alcohol-potassium carbonate two-phase conditions", Bull. Chem. Soc. Jpn., 1996, vol. 69, p. 1029-1031

文献6: AKIYAMA R. and KOBAYASHI S. "The polymer incarcerated method for the preparation of highly active heterogeneous palladium catalysts", J. Am. Chem. Soc., 2003, vol. 125, p. 3412-3413

第Ⅷ欄 国際出願に対する意見

請求の範囲、明細書及び図面の明瞭性又は請求の範囲の明細書による十分な裏付についての意見を次に示す。

請求の範囲 1 及び 8 に記載された「パイプフロー」について、本願明細書中では図 8 に示される、溶液が壁面を伝い、気体が管の中心部を通過する流れを意味するよう説明されているが、通常、「パイプフロー」なる言葉は、広くパイプ内を流れることを示すから、明細書中の説明と請求の範囲 1 及び 8 の記載から想定される発明との間に齟齬があり、請求の範囲 1、8、及びこれらを引用する請求の範囲 3-7、10-13 は PCT 第 6 条に規定する明確性の要件を欠いている。

補充欄

いずれかの欄の大きさが足りない場合

国際特許分類 (IPC) の続き

Int.Cl. C07C33/20 (2006.01), C07C45/62 (2006.01), C07C49/213 (2006.01), C07C49/403 (2006.01),
C07B41/12 (2006.01), C07C13/28 (2006.01), C07C67/00 (2006.01), C07C69/618 (2006.01), C07C211/46
(2006.01), C07C209/36 (2006.01), C07B61/00 (2006.01)

補充欄

いずれかの欄の大きさが足りない場合

第 1.4 欄の続き

26. 12. 2005 付の補正は、請求の範囲 1 に記載された、「流路の内壁となる金属触媒又は金属錯体触媒を担持したマイクロリアクターを用いた接触反応方法であって、液相となる被反応物質を溶解した溶液及び気相となる気体を、上記流路にパイプフロー状態で流し、上記溶液と上記気体との反応を上記金属触媒又は金属錯体触媒により促進される固相-液相-気相の 3 相系触媒反応で行うことを特徴とする、マイクロリアクターを用いた接触反応方法。」を「流路の内壁となる金属触媒又は金属錯体触媒を担持したマイクロリアクターを用いた接触反応方法であって、上記金属触媒又は金属錯体触媒が、高分子に取り込まれた触媒であり、該高分子に取り込まれた触媒が、上記高分子表面の基を介して、上記流路の内壁表面の基又はスペーサーにある基との共有結合により上記流路の内壁に担持されており、気相となる気体を、上記流路の中心部を通過させ、液相となる被反応物質を溶解した溶液を、上記気体と上記流路の内壁に担持された触媒との間を通過させ、上記溶液と上記気体との反応を上記金属触媒又は金属錯体触媒により促進される固相-液相-気相の 3 相系触媒反応で行うことを特徴とする、マイクロリアクターを用いた接触反応方法。」とするものであるが、該補正は、出願時における国際出願の開示の範囲を超えてされたものである。

すなわち、当初の明細書第 6～7 ページには、マイクロチャンネルの内壁がガラスの場合に、スペーサーの一端をトリアルコキシシラン構造で修飾してガラス表面のシラノール基と結合させ、スペーサーの他端をアミノ基等の官能基で修飾して高分子表面の例えばエポキシ基と結合させること、マイクロチャンネルの内壁が樹脂の場合には、樹脂表面をアミノ基等の官能基で修飾し、上記エポキシ基と結合させることができる旨記載されているが、マイクロチャンネルの内壁の材質、スペーサーの端又は高分子表面の基のいずれか 1 つ以上を特定しない上記請求の範囲 1 に記載された方法は、出願時における明細書、請求の範囲、及び、図面には記載されておらず、自明の事項でもない。

請求の範囲 8、14-17 及び明細書第 3、3/1、4、4/1 ページにおける補正についても同様である。

補充欄

いずれかの欄の大きさが足りない場合

第 V.2 欄の続き

文献 7 : 触媒工学講座 6 触媒反応 (1) 水素化, 株式会社地人書館, 1965. 02. 10, p. 224 4.
1.2 水素化反応に使用する触媒参照

文献 8 : 接触水素化反応-有機合成への応用-, 株式会社東京化学同人, 1987. 04. 10, p. 41-54 1.4 繊維金属錯体触媒の調製参照

説明 :

(1) 請求の範囲 1 に記載された発明は、上記文献 2~4 により進歩性を有しない。

文献 1 にはマイクロリアクターの流路に気体及び液体の流体を供給し、当該 2 流体の間で化学反応を実施する方法が記載されている。

請求の範囲 1 に記載された発明と文献 1 に記載された発明とを対比すると、前者では、流路の内壁に金属触媒又は金属錯体触媒が担持されているのに対し、後者では担持されていない点 (相違点 1)、及び、前者では液相と気相を流路にパイプフロー状態で流す方法であるのに対し、後者では、これら流体の供給方法が特定されていない点 (相違点 2)、前者では、固相-液相-気相の 3 相系触媒反応であるのに対し、後者では、液相-気相の 2 相系反応である点 (相違点 3) で相違し、その余の点で一致する。

まず、上記相違点 1、3 について検討する。

文献 1 には、触媒フィルムを壁面に置くこと、及び、これらリアクター壁面の触媒効果によって反応速度が促進される旨が記載されている。

また、マイクロリアクターの流路にスパッタリング等の方法により金属触媒を担持させることは当業者に周知である (文献 3、4 等参照)。

そうすると、文献 1 に記載された方法において、流路に触媒を担持し、固相-液相-気相の 3 相系触媒反応とすることは当業者が容易に想到し得るものである。

次に相違点 2 について検討する。

文献 2 に記載されている通り、マイクロリアクターを用いた反応において、液相を流路表面をコーティングするように供給し、気体をリアクターの中心を通過させる方法 (請求の範囲 1 に記載された発明の「パイプフロー」に相当) は、スラグフローよりも反応性を向上させることが公知である。

そうすると、流体の供給方法として、液相が流路内壁にコーティングされるような供給方法とすることは、当業者には容易である。

補充欄

いずれかの欄の大きさが足りない場合

第 V.2 欄の続き

(2) 請求の範囲 3-6 に記載された発明は、上記文献 1～8 により進歩性を有しない。

水素化反応等における触媒として周知の触媒（文献 3～8 等参照）を用いることは、当業者には容易である。

(3) 請求の範囲 7、8、10-13 に記載された発明は、上記文献 1～8 により進歩性を有しない。

文献 1 に記載された方法を、当業者に公知の気相に水素または一酸化炭素を用いた反応（文献 1、5）に適用することは当業者が容易に想到し得るものである。

文献5 : R. Akiyama and S. Kobayashi, J. Am. Chem. Soc., Vol.125, pp. 3412-3413 (2003)

文献6 : J. Kiji, T. Okano, Y. Higashimae and Y. Fukui, Bull. Chem Soc. Jpn., Vol. 69, pp.1029-1031 (1996)

しかしながら、これまでに不均一系触媒を用いた固相-液相-気相の3相系接触還元反応などの3相系接触反応をマイクロリアクターにより効果的に実現できた例はない。

発明の開示

本発明は、上記課題に鑑み、固相-液相-気相の3相系接触反応を短時間で収率良く行うことができる、マイクロリアクターを用いた接触反応方法を提供することを目的としている。

上記目的を達成するため、本発明は、流路の内壁に固相となる金属触媒又は金属錯体触媒を担持したマイクロリアクターを用いた接触反応方法であって、金属触媒又は金属錯体触媒が高分子に取り込まれた触媒であり、この高分子に取り込まれた触媒が、高分子表面の基を介して、流路の内壁表面の基又はスペーサーにある基との共有結合により流路の内壁に担持されており、気相となる気体を流路の中心部を通過させ、液相となる被反応物質を溶解した溶液を気体と流路の内壁に担持された触媒との間を通過させ、溶液と気体との反応を金属触媒又は金属錯体触媒により促進される固相-液相-気相の3相系接触反応で行うことを特徴とする。

上記構成において、好ましくは、気相が水素又は一酸化炭素からなる。

また、本発明の他の構成は、流路の内壁に固相となる金属触媒又は金属錯体触媒を担持したマイクロリアクターを用いた接触反応方法であって、金属触媒又は金属錯体触媒が高分子に取り込まれた触媒であり、この高分子に取り込まれた触媒が、高分子表面の基を介して、流路の内壁表面の基又はスペーサーにある基との共有結合により流路の内壁に担持されており、気相となる水素を流路の中心部を通過させ、液相となる被反応物質を溶解した溶液を水素と上記流路の内壁に担持された触媒との間を通過させ、溶液と水素との反応を金属触媒又は金属錯体触

媒により促進される固相－液相－気相の 3 相系接触還元反応で行うことを特徴とする。

上記構成によれば、各種物質の 3 相系接触反応による、水素化反応、水素分解反応又は又は一酸化炭素挿入反応を短時間で収率よく行うことができる。

上記構成において、金属触媒媒は、好ましくはパラジウムである。金属錯体触媒は、好ましくはパラジウム錯体触媒である。

金属触媒は、クロム、マンガン、鉄、コバルト、ニッケル、銅、モリブデン、ルテニウム、ロジウム、タングステン、オスミウム、イリジウム、白金のいずれかであってもよい。金属錯体触媒は、クロム、マンガン、鉄、コバルト、ニッケル、銅、モリブデン、ルテニウム、ロジウム、タングステン、オスミウム、イリジウム、白金のいずれかの金属錯体触媒であってもよい。

好ましくは、流路の内壁の表面がシラノール基を有しており、スペーサーがシラノール基と $\text{Si}-\text{O}-\text{Si}$ 結合により共有結合している。好ましくは、高分子表面の基がエポキシ基であり、スペーサーにある基がエポキシ基と結合する官能基で修飾されている。

本発明によれば、マイクロリアクターのマイクロチャンネルの内壁部に触媒、特に固相となる金属触媒又は金属錯体触媒を担持して、3相系接触還元反応などを短時間で行うことができる。さらに、生成物と触媒との分離や触媒の回収などの煩雑な操作も不要となるので、長時間の連続運転が可能である。

図面の簡単な説明

図1は、本発明の実施の形態に用いるマイクロリアクターの構成を模式的に示し、(a)は平面図、(b)は(a)のY-Y線に沿う断面図を示している。

図2は、本発明に用いるマイクロリアクターのマイクロチャンネルを通過する溶液及び水素の状態を示す断面図である。

図3は、P I 触媒をマイクロチャンネルに担持する反応を模式的に示す図である。

図4は、実施例1で用いたP Iパラジウム触媒の作製方法を示す図である。

図5は、実施例1のベンザルアセトンの水素化反応による反応生成物を示す図である。

図6は、実施例2～8の水素化反応の収率を示す図である。

図7は、実施例9のカルボニル化反応の収率を示す図である。

図8は、従来のマイクロチャンネル中の、(a)スラグフロー及び(b)パイプフローを模式的に示す断面図である。

発明を実施するための最良の形態

本発明は、以下の詳細な発明及び本発明の幾つかの実施の形態を示す添付図面に基づいて、より良く理解されるものとなろう。なお、添付図面に示す種々の実施例は本発明を特定または限定することを意図するものではなく、単に本発明

に担持された触媒 5 との間を通過し、所謂、パイプフロー状態となり、マイクロチャンネルの入力部 4 a から出力部 4 b までを通過する。この際、図示しない溶液 7 及び水素 9 の流量調整部により、溶液 7 及び水素 9 の流量が上記のパイプフロー状態となるように制御される。

このようなマイクロリアクター 1 を用いて固相-液相-気相反応を行うには、送液ポンプ 6 から液相反応液 7 を、ガスバルブ 8 から水素 9 をマイクロチャンネル 4 にパイプフローとなるように注入する。マイクロチャンネル 4 を通過中に、その内壁 4 c に担持した触媒 5 の作用により、マイクロチャンネルを通過する反応溶液 1 2 及び水素 1 4 を反応させる。反応により生成した目的物を含む反応混合物は、回収容器 1 0 に集められ、必要に応じて外部に取り出される。

ここで、固相-液相-気相反応において、気相が水素の場合には被反応物質の水素化、すなわち、接触還元反応が、また、気相が一酸化炭素の場合には被反応物質の一酸化炭素挿入反応、例えば、カルボニル化反応などの接触反応を生起することができる。

固相-液相-気相反応に用いる固相の触媒 5 としては、パラジウム (P d)、クロム (C r)、マンガン (M n)、鉄 (F e)、コバルト (C o)、ニッケル (N i)、銅 (C u)、モリブデン (M o)、ルテニウム (R u)、ロジウム (R h)、タングステン (W)、オスミウム (O s)、イリジウム (I r)、白金 (P t) のいずれかの金属触媒又は金属錯体触媒を用いることができる。

上記触媒 5 は、上記の金属触媒又は金属錯体触媒を高分子又はポリマー内に固定化したポリマー封入触媒 (以下、P I 触媒と呼ぶ。) 5 が好適である (上記文献 5 参照)。P I 触媒 5 は、マイクロチャンネルの内壁 4 c から脱離しないように強固な接合とするために、共有結合で固定化、すなわち担持することが好ましい。そのためには、マイクロチャンネルの内壁 4 c がガラスの場合には、後述する P I 触媒 5 のスペーサー 4 d の一端をトリアルコキシシラン構造で修飾して、マイクロチャンネルの内壁 4 c となるガラス表面のシラノール基と結合させる。スペーサー 4 d の他端をアミノ基等の官能基で修飾しておくことにより直接 P I 触媒 5 の高分子表面の例えばエポキシ基と結合させることができる。マイクロチャンネルの内壁 4 c が樹脂の場合には、樹脂表面をアミノ基等の官能基で修

請 求 の 範 囲

1. (補正後) 流路の内壁に固相となる金属触媒又は金属錯体触媒を担持したマイクロリアクターを用いた接触反応方法であって、

上記金属触媒又は金属錯体触媒が、高分子に取り込まれた触媒であり、該高分子に取り込まれた触媒が、上記高分子表面の基を介して、上記流路の内壁表面の基又はスペーサーにある基との共有結合により上記流路の内壁に担持されており、

気相となる気体を、上記流路の中心部を通過させ、

液相となる被反応物質を溶解した溶液を、上記気体と上記流路の内壁に担持された触媒との間を通過させ、

上記溶液と上記気体との反応を上記金属触媒又は金属錯体触媒により促進される固相-液相-気相の3相系接触反応で行うことを特徴とする、マイクロリアクターを用いた接触反応方法。

2.

3. 前記金属触媒は、パラジウムであることを特徴とする、請求項1に記載のマイクロリアクターを用いた接触反応方法。

4. 前記金属触媒は、クロム、マンガン、鉄、コバルト、ニッケル、銅、モリブデン、ルテニウム、ロジウム、タングステン、オスミウム、イリジウム、白金のいずれかであることを特徴とする、請求項1に記載のマイクロリアクターを用いた接触反応方法。

5. 前記金属錯体触媒は、パラジウム錯体触媒であることを特徴とする、請求項1に記載のマイクロリアクターを用いた接触反応方法。

6. 前記金属錯体触媒は、クロム、マンガン、鉄、コバルト、ニッケル、銅、モリブデン、ルテニウム、ロジウム、タングステン、オスミウム、イリジウム、白金のいずれかの金属錯体触媒であることを特徴とする、請求項1に記載のマイクロリアクターを用いた接触反応方法。

7. 前記気相が水素又は一酸化炭素からなることを特徴とする、請求項1に記載のマイクロリアクターを用いた接触反応方法。

8. (補正後) 流路の内壁に固相となる金属触媒又は金属錯体触媒を担持したマイクロリアクターを用いた接触反応方法であって、

上記金属触媒又は金属錯体触媒が、高分子に取り込まれた触媒であり、該高分子に取り込まれた触媒が、上記高分子表面の基を介して、上記流路の内壁表面の基又はスペーサーにある基との共有結合により上記流路の内壁に担持されており、

気相となる水素を、上記流路の中心部を通過させ、

液相となる被反応物質を溶解した溶液を、上記水素と上記流路の内壁に担持された触媒との間を通過させ、

上記溶液と上記水素との反応を上記金属触媒又は金属錯体触媒により促進される固相-液相-気相の3相系接触還元反応で行うことを特徴とする、マイクロリアクターを用いた接触反応方法。

9.

10. 前記金属触媒は、パラジウムであることを特徴とする、請求項8に記載のマイクロリアクターを用いた接触反応方法。

11. 前記金属触媒は、クロム、マンガン、鉄、コバルト、ニッケル、銅、モリブデン、ルテニウム、ロジウム、タングステン、オスミウム、イリジウム、白金のいずれかであることを特徴とする、請求項8に記載のマイクロリアクターを用いた接触反応方法。

12. 前記金属錯体触媒は、パラジウム錯体触媒であることを特徴とする、請求項8に記載のマイクロリアクターを用いた接触反応方法。

13. 前記金属錯体触媒は、クロム、マンガン、鉄、コバルト、ニッケル、銅、モリブデン、ルテニウム、ロジウム、タングステン、オスミウム、イリジウム、白金のいずれかの金属錯体触媒であることを特徴とする、請求項8に記載のマイクロリアクターを用いた接触反応方法。

14. (追加) 前記流路の内壁の表面がシラノール基を有しており、前記スペーサーが該シラノール基と $\text{Si}-\text{O}-\text{Si}$ 結合により共有結合していることを特徴とする、請求項1に記載のマイクロリアクターを用いた接触反応方法。

15. (追加) 前記高分子表面の基がエポキシ基であり、前記スペーサー

にある基がエポキシ基と結合する官能基で修飾されていることを特徴とする、請求項1に記載のマイクロリアクターを用いた接触反応方法。

16. (追加) 前記流路の内壁の表面がシラノール基を有しており、前記スペーサーが該シラノール基と $\text{Si}-\text{O}-\text{Si}$ 結合により共有結合していることを特徴とする、請求項8に記載のマイクロリアクターを用いた接触反応方法。

17. (追加) 前記高分子表面の基がエポキシ基であり、前記スペーサーにある基がエポキシ基と結合する官能基で修飾されていることを特徴とする、請求項8に記載のマイクロリアクターを用いた接触反応方法。